PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

11-106255

(43)Dat of publication of application: 20.04.1999

(51)Int.CI.

CO4B 35/46 CO4B 35/495

(21)Application number: 09-267585

(71)Applicant:

KYOCERA CORP

(22)Date of filing:

30.09.1997

(72)Inventor:

OKAWA YOSHIHIRO

MURAKAWA SHUNICHI

SUE TOSHIYUKI

(54) DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a high relative permittivity & epsi;r and a high Q value in a high frequency region. SOLUTION: This dielectric ceramic composition contains at least a rare earth element (Ln), Al, M (M is at least one or mor of Ca and Sr), Ba and Ti as metallic elements and (a), (b), (c), (d), (e) and (x) are within the ranges of 0.056=(a)=0.450, 0.056= (b)=0.450, 0.100=(c)=0.500, 0<(d)=0.100, 0.100<e<0.470 and 3=(x)=4 with the proviso that 0.75=(b/a)=1.25, 0.75=(e/[(c)+(d)])=0.450, 0.100=(c)=0.500, 0<(d)=0.100, 0.100<e<0.470 and 0.100=(c)=0.500, 0<(d)=0.100, 0<(d)=0.11.25 and [(a)+(b)+(c)+(d)+(e)]=1 when the compositional formula according to the molar ratios of the metallic elements is r presented by aLn2Ox.bAl2O3.cMnO.dBaO.eTiO2 and has =95% relative density, =5% porosity and 1-30 μ m average crystal grain diameter. Furthermore, the composition contains α -Al2O3 as a crystal phase.

LEGAL STATUS

[Dat of request for examination]

13.07.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's d cision of rejection or application converted registration]

[Dat of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Dat of requesting appeal against examiner's decision of

rej ction]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-106255

(43)公開日 平成11年(1999)4月20日

(51) Int. C1.6

C 0 4 B

識別記号

FΙ

C 0 4 B 35/46

С

35/46 35/495

35/00

J

審査請求 未請求 請求項の数6

OL

(全8頁)

(21)出願番号

特願平9-267585

(71)出願人 000006633

京セラ株式会社

(22)出願日 平成9年(1997)9月30日 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

(72)発明者 大川 善裕

鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式

会社鹿児島国分工場内

(72)発明者 村川 俊一

鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式

会社鹿児島国分工場内

(72)発明者 須恵 敏幸

鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式

会社鹿児島国分工場内

(54) 【発明の名称】誘電体磁器組成物およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】高周波領域において高い比誘電率εr及びQ値

【解決手段】金属元素として少なくとも稀土類元素(L n)、A1、M (MはCaおよびSrのうち少なくとも 1種以上)、Ba及びTiを含有し、これらの金属元素 のモル比による組成式をa Ln2 Ox ・b Al2 O3 ・ cMO・dBaO・eTiO2と表したとき、前記a、 b、c、d、eおよびxが、0.056≦a≦0.45 $0, 0. 056 \le b \le 0.450, 0.100 \le c \le$ $0.500, 0 \le d \le 0.100, 0.100 < e <$ 0. 470、 $3 \le x \le 4$ 、ただし、0. $75 \le b/a \le$ 1. 25, 0. $75 \le e/(c+d) \le 1$. 25, a+ b+c+d+e=1の範囲内にあり、相対密度95%以 上、気孔率2%以下、平均結晶粒径1~30μm、結晶 相としてα-Al₂O₃を含むことを特徴とする。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】金属元素として少なくとも稀土類元素(L n)、A1、M (MはCaおよびSrのうち少なくとも 1種以上)、Ba、及びTiを含有し、これらの金属元 素のモル比による組成式をaLngOx・bAlgOg ・cMO・dBaO・eTiO2と表したとき、前記 a、b、c、d、eおよびxが

 $0.056 \le a \le 0.450$

 $0.056 \le b \le 0.450$

 $0.100 \le c \le 0.500$

 $0 \le d \le 0.100$

0.100 < e < 0.470

 $3 \le x \le 4$

ただし、 $0.75 \le b/a \le 1.25$ 0. $7.5 \le e / (c+d) \le 1.2.5$

a + b + c + d + e = 1

の範囲内にあり、相対密度95%以上、気孔率5%以 下、平均結晶粒径1~30μm、結晶相としてα-Α1 2 O3 を含むことを特徴とする誘電体磁器組成物。

【請求項2】α-A12O3量が、ペロブスカイト型構 20 造の結晶相の量に比べて体積で1/100000以上1 /10以下であることを特徴とする請求項1記載の誘電 体磁器組成物。

【請求項3】ペロブスカイト型構造の結晶相からなる結 晶の粒界に存在するα-Al。O3の体積が、ペロブス カイト型構造の結晶相からなる結晶の粒内に存在する α -Al₂O₃の体積よりも、多いことを特徴とする請求 項1および2記載の誘電体磁器組成物。

【請求項4】結晶相Ln2 Ox (3≤x≤4) (Lnは 稀土類元素)の量が、ペロブスカイト型構造の結晶相の 30 量に比べて体積で1/10以下であることを特徴とする 請求項1、2および3記載の誘電体磁器組成物。

【請求項5】ペロブスカイト型構造の結晶相がLnA1 O_{(X+3)/2} (ただし3≦x≦4) とMBaTiO₃ (M はCaおよびSrのうち少なくとも1種以上)との固溶 体を含むものであることを特徴とする請求項1、2、3 および4記載の誘電体磁器組成物。

【請求項6】仮焼、粉砕後のスラリーに分散剤を添加し て、等電位点のpHよりもpHを1以上変更した後、上 記スラリー中の粒子を成形型内で沈降させて成形する工 40 0.100≦c≦0.500 程を有することを特徴とする請求項1,2,3,4およ び5記載の誘電体磁器組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、マイクロ波、ミリ 波等の高周波領域において、εr、Q値が高く、τfを ゼロ付近に安定に制御し、製造上εr、Q値およびτf 特性のばらつきの小さい誘電体磁器組成物及びその製造 方法に関するものであり、例えば、マイクロ波やミリ波 料やMIC用誘電体基板材料、誘電体導波路用材料や積 層型セラミックコンデンサー等に用いることができる誘 電体磁器組成物及びその製造方法に関する。

2

[0002]

【従来の技術】誘電体磁器は、マイクロ波やミリ波等の 高周波領域において、誘電体共振器、MIC用誘電体基 板や導波路等に広く利用されている。そこに要求される 特性として(1)誘電体中では波長が $1/\epsilon r 1/2$ に 短縮されるので、小型化の要求に対して比誘電率が大き 10 い事、(2) 高周波での誘電損失が小さい事、すなわち 高Qであること、(3) 共振周波数の温度に対する変化 が小さいこと、即ち、比誘電率の温度依存性が小さく且 つ安定であること、以上の3特性が主として挙げられ

【0003】これらを満たすものとして、本件出願人 は、特開平6-76633号に示されるLnAlCaT i系(Lnは稀土類元素)の誘電体磁器組成物を提案し た。

[0004]

【発明が解決しようとする問題点】ところで、このLn AlCaTi系誘電体磁器組成物では、比誘電率εrが 34~46と高く、Q値は20000以上と大きくでき るものの、Q値が低いという課題があった。

【0005】本発明は、上記の課題に鑑みて案出された もので、高Q値である誘電体磁器組成物を提供するもの である。

[0006]

【課題を解決するための手段】本発明者等は上記課題に 対し、検討を重ねた結果、以下に示した誘電体磁器組成 物を製造することにより、Q値が高い誘電体磁器組成物 及びその製造方法を提供できることを知見した。

【0007】すなわち、金属元素として少なくとも稀土 類元素(Ln)、Al、M(MはCaおよびSrのうち 少なくとも1種以上)、Ba、及びTiを含有し、これ らの金属元素のモル比による組成式をa Ln2 Ox ・b Al₂O₃・cMO・dBaO・eTiO₂と表したと き、前記a、b、c、d、eおよびxが

 $0.056 \le a \le 0.450$

 $0.056 \le b \le 0.450$

 $0 \le d \le 0.100$

0.100 < e < 0.470

$3 \le x \le 4$

ただし、0. $75 \le b/a \le 1.25$

0. $7.5 \le e / (c+d) \le 1.25$

a + b + c + d + e = 1

の範囲内にあり、相対密度95%以上、気孔率5%以 下、平均結晶粒径1~30μmであり、結晶相としてα -Al₂O₃を含むことを特徴とする。さらに次の要件 などの高周波領域において使用される種々の共振器用材 50 を満足すると、Q値が高くなることを知見した。

【0008】第1に、α-Al₂O₃ 量が、ペロブスカ イト型構造の結晶相の量に比べて体積で1/10000 0以上1/10以下の誘電体磁器組成物であることを特 徴とする。ペロブスカイト型構造の結晶相はLnAlO (x+3)/2 (ただし3 $\leq x \leq 4$) とMBaTiO₃ (Mは CaおよびSrのうち少なくとも1種以上)との固溶体 を含むものからなることが望ましい。

【0009】第2に、ペロブスカイト型構造の結晶相か らなる結晶の粒界に存在するα-Al₂O₃の体積が、 在するα-Al₂O₃の体積よりも多い誘電体磁器組成 物であることを特徴とする。ペロブスカイト型構造の結 晶相は $LnAlO_{(x+3)/2}$ (ただし3 $\leq x \leq 4$) とMB a TiO3 (MはCaおよびSrのうち少なくとも1種 以上)との固溶体を含むものからなることが望ましい。

【0010】第3に、結晶相Ln₂O_x (3≤x≤4) (Lnは稀土類元素)の量が、ペロブスカイト型構造の 結晶相の量に比べて体積で1/10以下(ゼロを含む) である誘電体磁器組成物であることを特徴とする。ペロ ブスカイト型構造の結晶相はLnAlO_{(x+3)/2} (ただ 20 し3≤x≤4)とMBaTiO3 (MはCaおよびSr のうち少なくとも1種以上)との固溶体を含むものから なることが望ましい。

【0011】ここで、本発明における誘電体磁器組成物 とは、焼結体のことを意味している。

【0012】また、本発明の誘電体組成物において、各 成分のモル比a、b、c、d、eを上記の範囲に限定し た理由は以下の通りである。

【0013】即ち、0.056≦a≦0.450とした のは、a < 0. 056 の場合はtf が正に大きくなり、 τfの絶対値が30を越えてしまうからであり、a> 0. 450の場合はQ値が2000よりも低下すると ともに、τfが負に大きくなり、その絶対値が30を越 えてしまうからである。特に、 $0.078 \le a \le 0.4$ 00が好ましい。

[0014] st. [0.056≤b≤0.450 bl. のは、b<0.056の場合はQ値が30000よりも 低下し、 τ fが正に大きくなり、b>0. 450の場合 はQ値が30000よりも低下し、τfが負に大きくな ましい。

【0015】 さらに、0.100≦c≦0.500とし たのは、c < 0. 100の場合はQ値が30000より も低下し、 τ fが負に大きくなり、c>0. 500の場 合はQ値が低下し、τfが正に大きくなり、その絶対値 が30を越えてしまうからである。特に、0.150≦ c ≤ 0. 450 が好ましい。

 $\{0016\}$ st. $0 \le d \le 0$. 100 ≥ lt. ot. 0. 100 < dであるとQ値が低下するからである。

のは、 $e \le 0$. 100の場合は τ f が負に大きくなり、 e ≥ 0. 470の場合はQ値が30000よりも低下し τ f が正に大きくなるからである。特に、0. 150≤ e ≤ 0. 420 が好ましい。

【0018】また、0. $75 \le b/a \le 1$. 25とした のは、b/a<0.75であるとQ値が低下するからで り、、b/a>1. 25であるとQ値が低下するからで ある。

[0019] $\pm c$, $0.75 \le e/(c+d) \le 1.2$ ペロブスカイト型構造の結晶相からなる結晶の粒内に存 10 5 としたのは、e / (c+d) < 0. 7 5 であるとQ値 が低下するからでり、e/(C+d)>1.25である とQ値が低下するからである。

> 【0020】なお、稀土類元素 (Ln) はY、La、C e, Pr, Sm, Eu, Gd, Dy, Er, Yb, Nd 等がある。これらの稀土類元素の酸化物 Ln2 Ox (た だし3≦x≦4)としては、例えばY2O3、La2O $_3$ 、 CeO_2 、 Pr_6O_{11} 、 Sm_2O_3 、 Eu_2O_3 、 Gd_2O_3 , Dy_2O_3 , Er_2O_3 , Yb_2O_3 , Nd₂O₃がある。これらの稀土類元素は、Y、La、S m、Gd、Dy、Er、Yb、Ndが望ましく、La、 Ndが特に望ましい。

【0021】さらに、本発明の誘電体磁器組成物は、前 記組成物を主成分として、これにZnO、NiO、Sn O_2 、 Co_3 O_4 、 $MnCO_3$ 、 ZrO_2 、 WO_3 、 Li CO₃, Rb₂ CO₃, Sc₂ O₃, V₂ O₅, Cu O, SiO₂, MgCO₃, Cr₂O₃, B2O₃, G e O₂ 、S b₂ O₅ 、N b₂ O₅ 、T a₂ O₅ 等を添加 しても良い。これらは、その添加成分にもよるが、主成 分100重量部に対して6重量部以下の割合で添加する 30 ことができる。

【0022】また、本発明の誘電体磁器組成物において 相対密度95%以上、気孔率5%以下、平均結晶粒径1 ~30μmとしたのは高いQ値が得られ、これ以外の範 囲ではεrおよびQ値が低下するからである。結晶粒径 は焼結体内部を無作為に10箇所以上SEM写真を撮 り、これらを平均して求める。そのためには写真100 cm² にあたり50~200個程度の結晶が写る倍率が 望ましい。

【0023】本発明の誘電体磁器組成物において結晶相 るためである。特に、0.078≦b≦0.400が好 40 としてα-Al₂O₃のを含むのはQ値を高くするため であり、 $\alpha - A \mid_2 O_3$ が存在しないとQ値が低くなる からである。Q値を高くするためには、α-Al₂O₃ 量が、ペロブスカイト型構造の結晶相の量に比べて体積 で1/100000以上1/10以下であることが望ま しい。1/100000より小さい場合や、1/10よ り大きい場合はQ値が低下する。Q値を高くするために は、α-Al₂O₃ 量がペロブスカイト型構造の結晶相 の量に比べて体積で1/10000以上1/30以下が 特に望ましい。Q値を高くするためには、ペロブスカイ 【0017】また、0.100<e<0.470とした 50 ト型構造の結晶相はLnAlO(x+3)/2 (ただし3≦x

 \leq 4) とMBaTiO₃ の固溶体 (MはCaおよびSr のうち少なくとも1種以上) を含むものであることが望ましい。

【0024】また、Q値を高くするためにはペロブスカイト型構造の結晶相からなる結晶の粒界に存在する α — $A1_2O_3$ の体積が、ペロブスカイト型構造の結晶相からなる結晶の粒内に存在する α — $A1_2O_3$ の体積よりも多いことが望ましい。Q値を高くするためにはペロブスカイト型構造の結晶相からなる結晶の粒界に存在する α — $A1_2O_3$ の体積が、ペロブスカイト型構造の結晶 10相からなる結晶の粒内に存在する α — $A1_2O_3$ の体積の3倍以上であることが特に望ましい。

【0025】本発明の誘電体磁器組成物において、結晶相 $L_{n_2}O_x$ ($3 \le x \le 4$)(L_n は稀土類元素)の量が、ペロブスカイト型結晶相の量に比べて体積で1/10以下であることを特徴とするのは、高いQ値が得られるからであり、1/10より大きいとQ値が低下するからである。Q値を高くするためには、結晶相 $L_{n_2}O_x$ ($3 \le x \le 4$)(L_n は稀土類元素)の量が、ペロブスカイト型結晶相の量に比べて体積で1/15以下が特に20望ましい。またQ値を高くするためには、ペロブスカイト型結晶相は $L_{n_3}O_x$ (ただし $1 \le x \le 1$)とMTiO3の固溶体(MはCa、SrおよびBaのうち少なくとも1種以上)を含むものであることが望ましい

【0026】ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1$ 成形等の成形 形する。分散 素)の存在は、焼結体内部をTEM(透過型電子顕微 が望ましい。 鏡)を用いてX線スペクトルを測定することにより確認 なる。また、ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1$ 30 とができる。 2 O_3 、L L O_x ($3 \le x \le 4$)(L n は稀土類元 素)の存在量の体積比較はT E M を用いて以下の方法に より行う。 化ネオジウム

【0027】焼結体内部を3箇所以上無作為に選び、結晶全体が写っている結晶の結晶相を結晶粒子毎に同定する。TEMの倍率は写真 $100cm^2$ 当たり、結晶全体が写っている結晶が $10\sim50$ 個程度となる様にする。TEM写真に含まれる面積を同じ結晶相毎に合計し、これらの面積比を便宜的に体積比とする。また、結晶粒内、粒界に存在する $\alpha-Al_2O_3$ の体積比も同様にし 40 て求める。

【0028】本発明の誘電体磁器組成物を得るためには、以下の製造方法により製造することが必要である。【0029】出発原料として稀土類元素(Ln)、Al、M(MはCaおよびSrのうち少なくとも1種以上)、Ba及びTiの酸化物、炭酸塩、窒化物、炭化物等の焼成により酸化物に変化する原料を用い、これらの金属元素のモル比による組成式をaLn₂Ox・bAl₂O₃・cMO・dBaO・eTiO₂と表したとき、前記a、b、c、d、eおよびxが

0. $0.56 \le a \le 0.450$

0. $0.56 \le b \le 0.450$

 $0.100 \le c \le 0.500$

 $0 \le d \le 0.100$

0.100 < e < 0.470

 $3 \le x \le 4$

ただし、0. 75≦b/a≦1. 25

0. $7.5 \le e / (c+d) \le 1.2.5$

a + b + c + d + e = 1

の範囲内にある原料を粉砕して、メジアン粒子径0.4 ~2. 2 µ mとし、この粉砕物を1000~1300℃ で1~10時間仮焼後、メジアン粒子径0.4~2.2 μ mに湿式粉砕する。このスラリーに熱分解温度100 ~800℃の有機バインダーを2~10重量%添加後造 粒し、相対密度45~70%にて任意形状に成形、有機 バインダーに含まれる炭素を熱処理により95%以上除 去し、昇温速度5~300℃/時間で昇温、相対密度9 5%以上に達する温度にて1450℃~1650℃で1 時間~20時間保持し、最高温度から700℃までを降 温速度5~300℃/時間で降温することにより、 α-Al₂O₃結晶相を生成させて本発明の誘電体磁器組成 物を得ることができる。望ましくは上記と同様にして仮 焼、粉砕後得られたスラリーに、分散剤例えばポリアク リル酸アンモニウム等を添加して、等電位点よりもpH を1以上変更してスラリーの電位を変更した後、鋳込み 成形等の成形型中でスラリー粒子を沈降させる方法で成 形する。分散剤は飽和吸着量の2~10倍添加すること が望ましい。鋳込み成形後上記と同様にしてバインダー 除去、焼成を行い、本発明の誘電体磁器組成物を得るこ

【0030】本発明の誘電体磁器組成物の製造方法は、例えば以下の通りである。出発原料として、高純度の酸化ネオジウム、酸化アルミニウム、炭酸カルシウム、炭酸ストロンチウム、炭酸バリウム、酸化チタンの各粉末を用いて、所望の割合となるように秤量後、純水を加え、混合原料のメジアン粒子径が $0.4\sim2.2\mu$ mとなるまで $1\sim100$ 時間、ジルコニアボール等を使用したミルにより湿式混合・粉砕を行う。この混合物を乾燥後、 $1000\sim1300$ で $1\sim10$ 時間仮焼する。こうして得られた仮焼物をメジアン粒子径が $0.4\sim2.2\mu$ mとなるまで $1\sim100$ 時間、ジルコニアボール等を使用したミルにより湿式混合・粉砕を行う。さらに $2\sim10$ 重量%の熱分解温度 $100\sim800$ ℃の有機バインダーを加えてから脱水し、その後造粒または整粒する

【0031】こうして得られた成形用原料を公知の方法、例えば、金型プレス、冷間静水圧プレス、押し出し成形等により相対密度45~70%にて任意形状に成形後、空気中500℃で3時間保持して有機バインダーに50 含まれる炭素を95%以上除去し、昇温速度5~300

℃/時間で昇温、相対密度 95%以上に達するまで最高温度 1450 ℃ \sim 1650 ℂ で 1 時間 \sim 20 時間保持、最高温度から 500 ℂ まで降温速度 $5\sim$ 300 ℂ /時間で降温することにより、 α - A 1 2 0 3 結晶相を生成させて本発明の誘電体磁器組成物を得ることができる。

【0032】または、上記と同様に仮焼、粉砕後のスラリーにポリアクリル酸アンモニウム等を添加して0.1~2mg/m²吸着させ、電位点よりもpHを3~4高くした後、鋳込み成形等の成形型内でスラリー中の粒子を沈降させる方法で成形する。その後上記と同様にして10バインダーの除去、焼成を行い、本発明の誘電体磁器組成物を得ることができる。

【0033】なお、本発明の製造方法の例として、酸化 ネオジウムを稀土類酸化物のうち少なくともひとつ以上 に置き換えてもよい。

【0034】また、成形型内でスラリー中の粒子を沈降させる成形方法としては、上述した鋳込み成形や遠心成形等を行うことができる。

[0035]

【実施例1】出発原料として高純度の酸化ネオジウム (Nd_2O_3) 、酸化アルミニウム (Al_2O_3) 、炭酸カルシウム $(CaCO_3)$ 、炭酸ストロンチウム $(SrCO_3)$ 、炭酸バリウム $(BaCO_3)$ 、酸化チタン (TiO_2) の各粉末を用いてそれらを表1のモル比の 割合となるように秤量後、純水を加え、混合原料のメジアン粒径が2. 2μ m以下となるまで、ボールミルにより約20時間湿式混合、粉砕、乾燥後、1200℃で2時間仮焼した。

【0036】この仮焼物のメジアン粒径が2.2μm以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉砕を30行った。さらに得られたスラリーに熱分解温度が150~500℃であるバインダーを5重量%加えてからスプレードライにより整粒した。得られた整粒粉体を相対密度45~70%となる圧力で円板状に成形し、空気中500℃で3時間熱処理して有機バインダーに含まれる炭素分を95%以上除去し、昇温速度50℃/時間で昇温、1450~1650℃の温度で2時間保持、最高温

度から800℃まで降温速度10℃/時間で降温、800℃から室温まで100℃/時間で降温して焼成した。【0037】得られた焼結体の円板部を平面研磨し、アセトン中で超音波洗浄し、120℃で1時間乾燥した後、円柱共振器法により測定周波数3.5~4.5GHzで比誘電率 εr、Q値、共振周波数の温度係数 rfを個測定した。Q値は、マイクロ波誘電体において一般に成立するQ値×測定周波数 f=-定の関係から1GHzでのQ値に換算した。共振周波数の温度係数 rfは、一40~85℃の範囲で測定した。また、相対密度、気孔率を測定した。

【0038】ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1_2O_3$ 、 Nd_2O_3 の存在は、焼結体内部をTEM(透過型電子顕微鏡)を用いてX線スペクトルを測定することにより確認した。また、ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1_2O_3$ 、 Nd_2O_3 の存在量の体積比較はTEMを用いて以下の方法により行った。

【0039】焼結体内部を10箇所以上無作為に選び、 結晶粒子全体が写っている結晶粒子の結晶相を結晶粒子 20 毎に同定した。TEMの倍率は、写真100cm²当た り結晶が40個程度写る様にした。TEM写真に含まれ る面積を同じ結晶相毎に合計し、これらの面積比を便宜 的に体積比とした。また、結晶粒内、粒界に存在するα ーAl2O3の体積比も同様に求めた。

【0040】この結果を表1のNo. $1\sim1$ 7に示す。表1から明らかなように、各成分の組成比が本発明の範囲内のもの(No. $1\sim1$ 7)は、比誘電率 ϵ rが31以上、Q値が30000(1GHzにおいて)以上の優れた誘電特性が得られた。また、ペロブスカイト型構造の結晶相はNdAlO $_3$ とMBaTiO $_3$ (MはCaおよびSrのうち少なくとも1種以上)との固溶体であった。

【0041】一方、本発明の範囲外の試料(No.18 ~ 39)は、Q値が低いか、または τ f の絶対値が大きく30を越えた。

[0042]

【表1】

12
J

100	Md203	A1200	CeO	TIOZ	-		祖対徳度	表孔器	平均結果	a-A1203	g-A1203重比	Nd203	4 1	0.60	. F. f
No.	•		٠	•	bra	6/0	96		整価(μ≤)		粒内/粒界	体製比	• •		(ppm/°C)
	0.0000	0.0800	0.4250	0. 4150	1 0000	0, 9765	\$8.4	1.4	13.8	0.0010	0.19	0.068 :	41.6	33000	25. 1
	D. 1240	0. 1300	0.3730	0. 3730	1.0484	1,0000	96. 5	3.5	5.5	0.0063	0.08	0.024	36, 1	57000	5. 5
3 :	0, 0790	0.0790	0.4610	0.3810	1,0000	0.8265	99. 9	0.1	29.3	0.050	0.25	0.001	43.1	42000	24.4
-4	0.1250	0. 1250	0.3430	0.4070	1, 0000	1.1868	100.0		25. 1	0, 029	0.01	0.000	40.1	67000	0.0
5	0.1250	0.1250	0. 4070	0.3430 .	1.0000	0.8428	85.0	5.0	3.9	0.045	0.99	0.000	38, 4	46000	-5. T
	0.1400	0.1250	0, 4000	0.3350	0. 8929	0.8375	97. 8	2.4	1.0	0,0040	0.54	0.037	32.5	31000	-8.8
7	0. 1061	0. 1061	0. 1919	0. 3939	1,0000	1.0000	99. 8	0.2	22.0	0.0033	0.26	0.011	39.9	54000	8.0
8	0.0581	D. D	0.4119	0.4119	1,0000	1.0000	99.0	1.1	17. 6	0.0020	0.34	0.002	43.1	45000	
9:	0.0580	0.0620	0, 4380	0.4440	1. 1071	1.0137	98. 2	1.9		0.000067	0.12	0.000	44.3	33000	
10 t	0.4500	0. 3380	0. 1010	0.1100	0, 7533	1.0891	97. 5	2.4	2.4	0.000010	0.00	0,100	32.1	59000	~30.0
11	0. 3560	0. 4435	0.1003	0. 1002	1, 2450	0. 9990	96. 2	4.0	4.8	0,100	0.05	0.000	32.0	32000	
12 .	0.4000	0.3800	0. 1000	0. 1200	0. 9500	1. 2000	99. 1	0.8	24. 2	0.000020	0.24	0.042	33, 4	B2000	-28.4
13	0. 2000	0. 2000	0. 3000	0, 3000	1.0000	1,0000	94. 8	1.2	16.1	0.067	0. 67	0.000	31.2	57000	-2.5
14	0. 0620	0.0830	0. 5000	0, 3750	1.0161	0, 7500	95.6	4.2	4. 8	0.0033	0.18	0.000	46, 8	30000	
_ 15	0. 3800	0, 3950	0.1200	0, 1060	1.0395	0. 8750	97.3	2.9	6.7	0.00033	0.08	0.000	32.0	54000	-26.2
16	0.0680	0.0560	0.4480	0.4300	0.8485	0. 9598	96.0	1,8	10. 8	0.0064	0.44	0.000	45.7	34000	27.1
17.	0.0610	0.0820	0. 3720	0.4650	1.0123	1. 2500	99. 2	0. 7	. 30.0	0.00033	0.02	0.002	44, 4	34000	25.6
+18	0.0500	0,0800	0.4610	0. 4290	1. 2000	0. 9308	96. 7	3. 1	6.3	0,000016	0.85	0.001	42. D	19000	41.8
*19	0.4550	0. 3415	0. 1010	0. 1025	0, 7505	1.0149	95.5	4.3	4. 5	0.000056	0. 27	0.000	31.5	20000	~49.5
≠2 0.	0.0650	0.0600	D. 4390	D. 4480 .	D. 5435	1. 0000	96. 4	3. E	5. 5	D. DDD18	0. 18	0.002	45. 5	2000	51.4
		0, 4550		0, 1001	1. 2500	1. 2373	96.1	1.8	10.8	0.067	0.67	0.001	32.3 .	12000	~48. D
*221	0. 3990	0, 4200	0.0809	0. 1001	1. 0526	1. 2373	98.5	1.4	13. 8	0.018	0.60	0.007	42.8	11000	-40.7
	0.0580	9, 0580	0.5060	0, 3790	1, 0000	0. 7505	98.4	3.4	5.7	0.00048	0.05	0,001	32.4	3000	42.8
	D. 4000	0, 4000	0.1050	0, 0950	1.0000	0. 9048	95.5	4.6	4. 2	0.0016	0. 24	0,000	31.5	13000	-47. 9
	0.0780	0, 0670			0. 8590	1. 2500	26. 8	3. 1	8. 3	0.00020	0. 67	0.018	46.5	4000	26. 4
	0.0800	0, 0560	0. 4490	0. 4150	0. 7000	0. 9243	99. 6	D. 4	30. 0	0.00025	0. 18	D. 051	44. 2	3000	15. 9
	0. 1000	0, 1300	0.3730	0. 3970	1,3000	1.0643	97.5	2.4	8. 1	0, 029	0.07	0,005	40.6	8000	15.0
	0. 1200	0, 1200		0. 3100	1.0000	0.6889	97. 6	2. 3	8. 4	0. 045	0.41	0.001	40. 9	3000	5. 0
	0. 1350	0. 1350	0.3100	0. 4200	1,0000	1.3548	99. 0	0. 9	21. 5	0.0040	0.03	D. 000	42.0	1000	2.4
	0. 1250	0, 1250	0.4070	0. 3430	1,0000	0.8428	94.0	5. 9	3. 3	0.0033	0.63	0.001	19.5	2000	4.5
	0. 1061	0.1061	0. 3939	0. 3939	1,0000	1.0000	90.9	1.2	0. 5	0.0020	0.19	D. 000	37. 6	3000	10.1
	0.0881	0.0881	0.4119	0, 4119	1.0000	1.0000	98. 4	1.5	35. 0	0. 000087	0. 15	0.000	39. 9	13000	12.2
	0. 2000	0, 2000	0.3000	0. 3000	1,0000	1,0000	97. 3	2. 8	7.5	0.000000	0.38	0. 020	35.7	5000	-4.5
	0.0800	0,0800	0.4250	0. 4150	1,0000	0.9765	99. 4	0.5	28.0	0. 200	0. 24	0.007	36.8	4000	14.2
	0. 1240	0. 1300	0.3730	0. 3730	1,0484	1.0000	95. 4	4.8	4.0	0.00188	1.60	0.004	32.5	16000	-4, B
	0. 0790	0.0790	0.4610	0. 3810	1,0000	0. 8265	56.3	3.7	5. 2	0.0035	2.50	0.040	31.5	14000	16.3
	0. 1250		0.3430	0. 4070 :	1,0000	1.1866	64. 7	1.2	16. 1	0. 000026		0.150	32.5	7000	-1.2
+391	0. 1250	0. 1250	0.4070	0. 3430	1.0000	0.8428	58. Z	1, 9	10, 2	0.0094	0. 18	0. 250	34.0	2000	-2.5

+を付けた飲料番号は本発明の課求範囲外のものである。

[0043]

【実施例 2 】 次に、上記と同様にして出発原料として高純度の稀土類酸化物($L_{12}O_x$ (ただし $3 \le x \le 4$)、具体的には Y_2O_3 、 $L_{12}O_3$ 、 $C_{11}O_3$ 、 P_2O_3 、 P_2O_3

【0044】この仮焼物のメジアン粒径が2.2 μ m以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉砕を行った。さらに得られたスラリーに熱分解温度が150~500℃であるバインダーを5重量%加えてからスプレードライにより整粒した。得られた整粒粉体を相対密度45~70%となる圧力で円板状に成形し、空気中500℃で3時間熱処理して有機バインダーに含まれる炭素分を95%以上除去し、昇温速度50℃/時間で昇温、1450~1650℃の温度で2時間保持、最高温度から800℃まで降温速度10℃/時間で降温、800℃から室温まで100℃/時間で降温して焼成した。【0045】得られた焼結体の円板部を平面研磨し、アセトン中で超音波洗浄し、120℃で1時間乾燥した後、円柱共振器法により測定周波数3.5~4.5GH

個測定した。Q値は、マイクロ波誘電体において一般に成立するQ値×測定周波数 f=-定の関係から $1\,GHz$ でのQ値に換算した。共振周波数の温度係数 τ f は、-40 \sim 85 $^{\circ}$ Cの範囲で測定した。また、相対密度、気孔率を測定した。

【0046】ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1$ $_2O_3$ 、 Ln_2O_x ($3 \le x \le 4$)(Lnは稀土類元 30 素)の存在は、焼結体内部をTEM(透過型電子顕微鏡)を用いてX線スペクトルを測定することにより確認した。また、ペロブスカイト型構造の結晶相、 $\alpha-A1$ $_2O_3$ 、 Ln_2O_x ($3 \le x \le 4$)(Lnは稀土類元素)の存在量の体積比較はTEMを用いて以下の方法により行った。

【0047】焼結体内部を10箇所無作為に選び、結晶粒子全体が写っている結晶粒子の結晶相を結晶粒子毎に同定した。TEMの倍率は、写真 $100\,\mathrm{cm^2}$ 当たり結晶が40個程度写る様にした。TEM写真に含まれる面積を同じ結晶相毎に合計し、これらの面積比を便宜的に体積比としたこの結果を表 $20\,\mathrm{No.40}\sim90$ に示す。表2から明らかなように、各成分の組成比が本発明の範囲内のもの($10\,\mathrm{No.40}\sim90$)は、比誘電率 $10\,\mathrm{mom}$ において)以上の優れた誘電特性が得られた。また、ペロブスカイト型構造の結晶相は $10\,\mathrm{mom}$ にだし $10\,\mathrm{mom}$ にだし $10\,\mathrm{mom}$ にだし $10\,\mathrm{mom}$ にだし $10\,\mathrm{mom}$ とMBaTiOa(Mは $10\,\mathrm{mom}$ にだし $10\,\mathrm{mom}$ とMBaTiOa(Mは $10\,\mathrm{mom}$ において)なくとも $10\,\mathrm{mom}$ にの固容体であった。

後、円柱共振器法により測定周波数3.5~4.5GH 【0048】一方、本発明の範囲外の試料(No.91 zで比誘電率εr、Q値、共振周波数の温度係数τfを 50 ~112)は、Q値が低いか、またはτfの絶対値が大 きく30を越えた。

11

*【表2】

[0049]

*

文件(株工銀元素) Ma. Lo	r/Calt . Ln20x	A1202	Sr0+Cu0	BaD d	Ti02	****	b/a	ar (00d)	相対密度:		平均計画・設備(##	a-A1203重 体験比	a-A1203量注 執門/執罪		• • •	OH ;	- T
- ·	0.00 0.0800	:	0 3550	0.100	0.3850	1,0000	1 0000	1 (1.8662)	91. 2	0.9	14.4	0.901#	0.05	0.083	43.5	4500C	29.7
41 Hd	0.10: 0.1240			0.000	0. 2720		1.0484		97. B	1. 9	L 2	D, D0066	0.24	0.007	40. B	54000	10.5
42 Nd	0.60 0.0780			0.000	0.3810		1,0000		99.9	0.4	87.5	0.055	0. 67	0.000	42. B	24000	28. 4
43 Nd	O 80 : 0. 1250		0.3430	C 000	0 4070	1 (1000	: 1,0000	1. 1808	100.0	0.2	22. 1	0.0020	Q. 1B	0.000	41. 5	62000	4.8
44 Hd	1. DO G. 1250			0.010	0, 3430	1,0000	1,0000	Q. 8428	D.96	3.5	4.0	0.009	0,06	9.000	41 0	45000	4, 5
45 . La	0.00 0.1400	0.1250	0. 3800	0.010	0. 3350	1.0000	0, 1921	, 0. 8375	84.1	2. 3	1.0		D. 44	0,011	19 B	52000	15. 9
46 . La	0.10 0.1001	0. 1061	0, 3929	0.001		1,0000	1,0000		98.5	1. 8		0.00010	0,02	0,005	30 B	42000	1d. 7
47 LA	0.50 0.0441	D. C881	G. 4109	0.001		1.0000			94.8	0, 2	15.5.	0, 00016	0, 65	0.005	45 5	40000	27, 9
48 · La	0.00 0.0560			0.001	0. 4440		1, 1071		56.5	1. 2		0,00022	0.27	0,000	45 4	34000	29. B
49 LA		0. 3390		0,010		1.0000			96.8	4.4		0.00013	0.18	0.080	31 B	32000	-28. 9 -28. 4
50 Y	0.00 0.3660		0. 1009	D, 000	0.1002			0.9990	90.2	3.6		0.0120	0.87	0,000	31 7	31000	-28.4
51 0.1Y-0.0HM	0, 10 · Q. 4000			0.000		1 2.0000			\$9.1	0, 3		0, 000002	0, 80 0, 06	0.019	32 9 ;		
52 La	0, 50 6, 2310			0.010				1 0 7516	67.4	3, 1	18.8	0.022	0.00	4 000	38 3	22000	-12.3
52 & 1La 0. 014	0. 90 + 0. 0600			D. 000	0. 3800 0. 1060		1, 0000 1, 0295		90,1	2.0		0.00005	0.87	6 000	48 B	24000	22.0
64 Q 5La-0.5944:	1.30 0.3800		0.0900	0.030	0. 4300		0.6465		29.5	2.0		D. 00000ED	D. 18	0.000	32 9	33000	-26.4
56 Q 1Co-0.9Md:	0.00 i 0.0000 0.10 · 0.0010			D. 000	0.4850		1,0123		29.4	0.0		D. 000008	0.07	0.006	44 8	32000	20.0
57 Fr	0, 10 · 0, 0110			0.001	0. 2510		1. 0175		96.1	5.0			0.41	0.001	42.0	46000	19.5
\$8 'Q. 1Cu - 0, BNb/	0.30 0.3500	0, 2300		0.010	0. 1800		0.8000		P5.8	3.7		0. D22	0.03	0 000	42 6	36000	10.4
59 Pr	1. 30 · G. 2150			0.001	0. 1000		1,2104		97.5	3.1	5. 2	0.040	0.83	0.001	33 6	43000	0.4
60 · 0. IPr · 0 BMd	0.50 : 0.0400			0.100	0. 3650	1,0000	1,0004		99.1	1. 9	13. 8	0.0054	0.19	0.003	24.7	E3000	6.2
6) Q SPr Q 5Md	0.10 Q. 1240			0.000	0, 3730	- 1.000C	1,0464	1,0000	97.5	2.7	12.2	0.000010	0, 15	· 0.018		64000	2. 5
17 3m	0.50 0.0790			0,000	0.3610	1,0000	1.0000		96.U	4.1	5, 9	0.00046	0.38	0.001	32.1	46000	
13 '015m-D. DHd	D. 20 D. 1250	0. 1250	0,3430	0.000	0.4070	1.0000	1,0000	1, 1866	96.5	2.9	4.4	0, 100	D, 24	9,000	39, C	42000	7. 8
14 Q 53a 0, 51d	1.00 · C. 1250	0. 1250	0, 3970	0,010	Q. 3430	1.0000	1.0000	0 1421	97.4	3.1	5. Q	0.0023	D. 58	0.006	39. 4	58000	10.1
15 Eu	0.00 D.1400	0 1750	D 2000	0,010	0.3350	1.0000		1 0 8375	99. 2	1.1	3C. O	0,068	0.00	0.084	39. 1	57000	19. 4
68 64	D. 10 : D. 1061	0. 1061	0.3029	0.001	0.3939		1,0000		87.7	2. 4		0,0060	0.84	0,007	38. 5		20.8
47 · Dy	D. 56 1 D. 0861	Q. 0851	D. 4109	0, 901	O. 411B		1.0000		87.6	2.2			0.55	0,000	37. 4		
68 0.50y 0.544	D. 90 · 0. 2310			0.010	0. 2330		0.9784		. 39.1	1.2		2.020	0.09	a. 000	42.0	31000	
19 Er	1,00 D. 1140			0. 001	D. 3610		1. 01 79		95. D	4.8		7 010	0, 50	0.003	37. 0	27000	-5. 6
10 0.5Er-0.6Nd	0.00 0.3800			0, 010			O ADDIC		94.7	0.8		0, 30040	0.64	0.000	32. 7	35000	7.4
21 Yb	0. 10 D. 3000			0.001	D. 1900		. 1.1000		98.0	1, †		0.000420	0.64	0.000	52. 7	53000	10.0
72 0 576-0, 5Nd.	0. 50 0. 1140			0.001	D. 3610 D. 1800		0.8000		97.0	2.6		2 022	0.25	0.018	36. 1	57000	5, 9
72 Y	0,90 0,3500			0.001	0.1900		1,1000		95. 8	3.7		0 0028	0.19	0.010	34.9	50000	2. 7
74 0 57-0, 584	0.00 O.0000			0.001	0. 3850		1.0000		98 1	4.5		0. 0000091	0.06	0.060	22. 8	48000	-18. O
75 La 76 O ILa-O PHd-	0.10 0.1240			0.100	0.3230		1.046		94.0	2.4		0.000014	0.47	0.018	32.0	64000	-4.1
77 O Sta U SM	0.50 0.0790			6.000	0. 3810		1.0000		94.3	7		0.000029	0 65	0,008	21. 8	67000	0. 7
78 D 5Ca · 0. 5La	0.90 0.1250			0.000	0.4070		1.0000		97.4	2.3	9.8	0, 0000035	Q 25	0.016	33. 5	60000	-4 5
78 0 SPr 0.5La	1.00 U.1250			0.010					00.1	0.4		0. 000058	0.47	0.007	31. 8	85000	-10 3
10 0.55a-0.5La.	0.00 Q.1400		0, 3900	0 010	0, 3150	1, 2000	0.8921	0 8375	95. C	4.5	1 16	0.000001	0.91	0.000	33 6	57000	7, 3
81 O 5Eu O 5LA	0.10 0.1061	Q. 1961	0.3029	0.001	0. 2936	1,0000	1,0000	1 0000	96.0	3. 4	3.5	0.023	0.04	0.000	38, 8	48000	14. 2
12 0 50v 0.5La	0. 50 0. D&A1	G. 0481	0. 4106	Q. 001	0 4118	1,0000	1.0000	1 0000	94.2	2. 3	16.5	0.0012	9, 98	0.044	35. 6	53000	11. 8
EJ .Q SEr .Q. S.a.	0, 90 Q. 2310	G. 2260	0, 3000	0.010	0. 2330	1,0000	0.976	0 7518	94.5	1, 9	11.3	0.00018	0.03	0.009	38. 0	58000	-2, 0
84 0.579-0.5La.	1.00 0.1140	0.1160	Q 4000 -	0.001	0.3010				98, 4			0 0000	0.05	0.000	34. 8	64000	8.0
15 D. 67 10. S.A	0.00 0.3500		0, 1800	0.010					96.5	3.1		0 0071	0.14	0.000	72.0		-19 3
86 - D. 1La - D. 8Md :	<u> 0. 10 0. 3000</u>			0,001	0. 1900					. 0.4		0.012	0.58	0.001	31. (
67 0. BLa O. Side	0.50 0 3000			0.001		1.0000			100.0	0.2			0,00		33.7		26. 7
64 - 0. 1La-0. 984	0.90 0.1240			0.000								D 0048	0.04	0.005	38. 9 32. 8	70000	
69 D. BLa D. 544	1.00 . 0.0780			0.000					97. 3	2.6		9 0081	0.01	0.007			
00 0. Sa. O. She:	0.00 0.2310	0, 2260	0.3000	0.010	0. 1330	1.0000	0.876	0 7516	99.8	0.0	10.4	0.011	0.41	0.009	37 8	64000	. 0.4

[0050]

※ ※【表3】

ME	设主要无效	Sr/Calt.	Le20x	- A1200	SrO+CaD	SeC	TiOZ	athre			福労田屋	【孔本 】	平均特益	a-A1203	a-A12四重比			0 1	r f
Ha.	L			: b		d	•	+d+a	b/a	e/ (c+d)	96	90	政権(ルコ)	体製比	粒内/粒界	件製比			(December of C)
			!								:								
	1 5La · 0. 5%				i d. 4610 i		D. 4290 ·					40:			0. 72		31.6	3000	
-02		0, 10			0. 1010 -		D. 025					1.7	3.4	0.000047	0, 15	0.019	33. 6	4000	
+63]	T TY-C. SNJ	Q 30	0.0000	0.0500	0.4390	0.000	0.4480			1,0159		4.8	7, 4	0.00030	0.14	0.040	32.4	2000	
+54	1. IC+ 0. 9Hd	0.50	0, 3640	0.4550	G. 0809	0.000	0.1001		1. 2500			1. 3	9. D	0.043	0.63	0.010	30. 4	5000	-10.4
-45	5. 5Pr -0. 5Hd	1.00	D. 399D	0.4200	0.0809	0.000	0.1001	1.0000	1.0526	1. 2373		1. 8	23. 5	0.039	0.60	0.012	40. 8	12000	-68, 2
+48	3. ILA-0. 5Hd	0.00	0, 0580	0.0580	0.5050	0.000	D. 3790	1,0000	1,0000	0. 7500		1,4:	4. 3			0.004 :		4000	52.7
+871	0. 5La 0. 5Hd	0.10	0, 1000	D. 1000	0.2500	0.200	0.3500	1.0000	1.0000	0.7778	97.3	2.8	14, 4	0, 0012		0.005		8000	28. 6
*68	0.5Ca · 0.5La	0.50	0. 4000	. D. 4000	0, 1050	0,000	0.0950	1.0000	1.0000	0 9048	PE 1	3.2:	3. 5	0.0010		0.000		10000	-35.1
403	0. 5Pr · 0. 5La	0.90	0,0760	0.0870	0,3800	0.000	0. 4750	1.0000	D. 4590	1, 2500	98.0	40		0.00044	0.56	9.000	41.5.	6000	31.8
*100	0.55a-0.5La	1,00	D. C800	0.0560	0,4480	0.000	0.4150	1.0000	· 0. 7000	0.9243	97.1	0.2					31. 6 ,	14000	
**101	3. SEu- 0. Sla	0.00	0.1000	D, 1300	0.3730	0.000	0.3970	1,0000	1. 2000	1.0643	99.5	3.4	10.7	0. 053		0.004		11000	12. 3
*1021	D. 50v · O. 5La	0.10	0.1200	0, 1200	0. 4500 :	8,000	0.3100	1.0000	1.0000	C. GALL	99. C	1. đ i	7, 1	0, 029				1000	
+103	0. SEr · 0. SLa	0,50	0, 1350	0, 1350	· 0.3100 :	0.000	0.4200	1.0000	1.0000	1, 3548	96. 6	1.2	21. B					3000	
+104	572 · 0.5La	0.80	0. 1250	0 1250	0, 4070 ;	8,000	0.3430 ·	1,0000	1.0000	· C. 8428	94. C	5. 9	2.5	0. 0024	0.36	0.902	31. 6	2000	-0.1
*1051	D. 51 . O. 5La			D. 1061			0.3939	1,0000	1.0000	1,0000	98.8	1.6	0.5		0.15	0.000	31. D	3000	14. B
	D. ILa-O. SNd	0.00	0. D481	0.9881	0.4119	0.000	0.4119	1.0000	1.0000	1.0000	57.9	0.6	35. D	0.000058	0.14		39. 5	19000	
+107	0. Sl.a. O. Skd	0, 10	· 0, 2000	0, 2000	0.3000	0,000	0.3000	1,0000	1.0000	1,0000	96. C	3. 0	12.7	D. 0000000	0.32		30, 4	18000	
+108	D. 1La-0. 9Nd	0.50	· 0. 0400	0.0600	0. 4250	0,000	0.4150	1.0000	1.0000	0. 8765	96. C :	0.4	21.3			0.017	34. B	10000	
	0.54.0.54						0.3730		1.0484	· 1. 0000	96. 8	6.2	5.4	0.0035	1.50	0.034	34. D	7000	
	0. 5La · 0. 5Md			0. 0790	· 0.4610	0,000	0.3810	1,0000	1.0000	0 8265	96. 4	1. 5	4.4	0.0023	2.40		32.7	6000	
	0. 5La-0. 5Hd			0. 1250	0.3430		0.4070			1. 1866	· 99.0	1,6	27.4	0.000022	0.04	0 160	32. B	3000	
	0. 5La · 0. 5Nd	0.50			0.4070	0.000	0, 3430	1,0000	1.0000	0.8428	09. f	0, 8	7.8	D. 017	0.18	0. 260	30. 5	2000	-10. 4

*を付けた試験音号は本発明の頭求範屋外のものである。

[0051]

【実施例3】さらに、実施例1、2と同様に出発原料として高純度の稀土類酸化物($Ln2O_x$ (ただし3 $\leq x$ ≤ 4)、具体的には Y_2 O_3 、 La_2 O_3 、 CeO_2 、 $PreO_{11}$ 、 Sm_2 O_3 、 Eu_2 O_3 、 Gd_2 O_3 、 Dy_2 O_3 、 Er_2 O_3 、 Yb_2 O_3 、 Nd_2 O_3)、酸化アルミニウム(Al_2 O_3)、炭酸カルシウム(Ca CO_3)、炭酸ストロンチウム($SrCO_3$)、炭酸バリウム($BaCO_3$)、酸化チタン(TiO_2)の各粉末を用いてそれらを表2、3のモル比の割合となるように秤量後、純水を加え、混合原料のメジアン粒径が2.2 μ m以下となるまで、ボールミルにより約20時間湿式混合、粉砕、乾燥後、1200℃で2時間仮焼した。

【0052】この仮焼物のメジアン粒径が2.2μm以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合、粉砕を40行った。得られたスラリーに、分散剤としてポリアクリル酸アンモニウムを添加して、等電位点よりもpHを2~5高くしてスラリーの電位を変更した後、鋳込み成形した。ポリアクリル酸アンモニウムの添加量は飽和吸着量の2~10倍であった。鋳込み成形後実施例1、2と同様にしてバインダー除去、焼成等を行い、同様の評価を行った。

【0053】その結果、実施例1、2と同様に1GHz 換算において30000以上のQ値が得られた。

【0054】一方、分散剤を添加せず、電位、pHの調 50 整をしなかった場合はQ値が20000よりも低くなっ 13

た。

[0055]

【発明の効果】以上詳述した通り、本発明によれば、高 周波領域において高い誘電率及び高いQ値を得る事がで きる。これにより、マイクロ波やミリ液領域において使用される共振器用材料やMIC用誘電体基板材料、誘電体導波線路、誘電体アンテナ、その他の各種電子部品等

に充分適用することができる。